

① 日本国特許庁 (JP)

① 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A)

昭59—22961

⑤ Int. Cl.³

識別記号

庁内整理番号

④ 公開 昭和59年(1984)2月6日

C 08 L 83/04

7016—4 J

C 08 K 5/54

C A M

7342—4 J

// C 08 G 59/14

6958—4 J

59/40

6958—4 J

C 09 J 3/16

7102—4 J

発明の数 1

審査請求 未請求

(全 3 頁)

⑤ 耐熱性接着剤

⑦ 発明者 井上寛

① 特 願 昭57—131215

川崎市幸区小向東芝町1 東京芝浦電気株式会社総合研究所内

② 出 願 昭57(1982)7月29日

⑧ 出 願 人 東京芝浦電気株式会社

⑦ 発明者 米屋勝利

川崎市幸区堀川町72番地

川崎市幸区小向東芝町1 東京芝浦電気株式会社総合研究所内

⑨ 代理人 弁理士 則近憲佑 外1名

明 細 書

1. 発明の名称 耐 熱 性 接 着 剤

2. 特許請求の範囲

表面に耐食性の高い絶縁層を被覆した窒化アルミニウム粒が含有された熱硬化型合成樹脂からなることを特徴とする耐熱性接着剤。

3. 発明の詳細な説明

〔発明の技術分野〕

この発明は熱伝導性、電気絶縁性および耐熱性のすぐれた熱硬化型耐熱性接着剤に関する。

〔発明の技術的背景およびその問題点〕

従来から加熱したり、常温に冷却したりするサイクルを繰り返すたとえば圧力釜や保温釜などにセラミックヒータを接着する場合、熱伝導性、電気絶縁性および耐熱性を併せもった接着剤が要求される。

従来、耐熱性接着剤としては、シリコンゴム中に SiO_2 、 Fe_2O_3 、 Al_2O_3 などを含有させたものが知られているが、電気絶縁性にすぐれている半面、熱伝導率が $0.86 \text{ kcal/mhr}^\circ\text{C}$ と低い欠点がある。ま

たシリコンオイル中に95%の ZnO を含有した接着性クリースも知られているが、上記と同様熱伝導率は $0.54 \text{ kcal/mhr}^\circ\text{C}$ と低い欠点がある。さらに熱伝導率が $8 \sim 10 \text{ kcal/mhr}^\circ\text{C}$ とすぐれた耐熱性接着剤も知られているが、金属粉末が含有されているため比抵抗が $8.4 \Omega/\text{cm}$ で電気絶縁性が劣る欠点がある。

ところで、熱伝導性のみを向上させるにはたとえば Cu 、 Al 、 Ag などの金属粉末を加えればよく、たとえば合成樹脂の熱伝導度は一般に $0.1 \sim 0.2 \text{ kcal/mhr}^\circ\text{C}$ で、 Cu は $338 \text{ kcal/mhr}^\circ\text{C}$ 、 Al は $194 \text{ kcal/mhr}^\circ\text{C}$ 、 Fe は $61.2 \text{ kcal/mhr}^\circ\text{C}$ である。そこで、合成樹脂に金属粉末を加えれば熱伝導性は向上するが、しかし電気絶縁性が低下しその点から使用に供し得ない。

また、難燃性無機系接着剤に電気絶縁性および熱伝導性のすぐれた物質を混入した場合には水分に対して弱く、湿気が通過し易くなって電気絶縁性が損なわれしかも長期間の使用に耐えない欠点がある。

本発明に先立ち、当社は熱硬化性樹脂中に AlN

を配した接着剤を開発したが湿気に対する反応性がきびしいため環境によってはかなり不利な面がでてきた。

〔発明の目的〕

この発明は上記の欠点を除去するためになされたもので、加熱・冷却の繰り返しサイクルに耐え、熱伝導性、電気絶縁性および耐熱性にすぐれしかも長期間の使用にも耐え得る接着剤を提供しようとするものである。

〔発明の概要〕

この発明は熱硬化型合成樹脂中に第1図に示すような表面に耐食性の高い絶縁層1を被覆した窒化アルミニウム(AlN)粒2を含有させてなる耐熱性接着剤である。

ここで、熱硬化型合成樹脂としては三官能性エポキシ樹脂にジアミノ・ジフェニル・メタン(DDM)
 $\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ を混合したもの(たとえば商品名: スミエポキシ ELM-120 住友化学KK)、シリコンワニス(たとえば商品名: TSR-117 東芝シリコンKK)、フェノール樹脂(たと

えばセメダイン-120)、ポリウレタン(たとえばセメダイン-700)、アクリル系接着剤(たとえば商品名: ハードロックC 電気化学KK)、ユリア樹脂、メラミン樹脂およびポリイミド樹脂などが適用される。

窒化アルミニウム(AlN)は熱伝導率が約43kcal/mhr $^{\circ}\text{C}$ で、耐熱性および電気絶縁性にすぐれ、一般に金属アルミニウム(Al)や酸化アルミニウム(Al_2O_3)を窒化処理することによって容易に得られる。

表面層としては耐食性、電気絶縁性、熱伝導性の観点から種々のセラミックスが適用される。中でも Si_3N_4 、 Al_2O_3 、BN、などはより好ましいといえる。尚表面層物質の比率は熱伝導と耐食性の観点から重量比で粒子の1~50%。好ましい範囲は5~20%である。

〔発明の実施例〕

以下、この発明の実施例を説明する。

エポキシ樹脂、シリコンワニス、フェノール樹脂、ポリウレタン、アクリル系樹脂などの熱硬化型合成樹脂液に溶媒たとえばメチルエチルケトン

(MEK)を加えて適度な粘度に調整したのち表面に Si_3N_4 あるいは Al_2O_3 を被覆した窒化アルミニウム粉末を加え充分かきまぜて各種の耐熱性接着剤を得た。このようにして得た各接着剤を真空脱泡して溶媒を除去したのち加熱硬化して1cmの立方体をつくり熱伝導率を測定した。その測定結果を第1表から第5表に示す。第1表にはエポキシ樹脂(ELM-120)中の複合窒化アルミニウムの混合割合と熱伝導率との関係を示し、第2表にはシリコンワニス(TSR-117)との関係を、第3表にはフェノール樹脂(セメダイン120加熱硬化型)との関係を、第4表にはポリウレタン(セメダイン-700)との関係を、第5表にはアクリル系樹脂(ハードロックC)との関係をそれぞれ示す。

なお、表中重量はgで、混合割合は重量%で、熱伝導率はkcal/mhr $^{\circ}\text{C}$ で示している。

以下余白

第 1 表

試料番号	1	2	3
ELM-120重量	8	7	6
複合AlN粉末重量	12	13	14
表面層の種類/量	$\text{Si}_3\text{N}_4/10\%$	$\text{Si}_3\text{N}_4/10\%$	$\text{Si}_3\text{N}_4/10\%$
AlN配合割合	60	65	70
熱伝導率	1.80	1.89	2.20

第 2 表

試料番号	4	5	6
ワニスの重量	4	3	2
複合AlN粉末重量	10	10	10
表面層の種類/量	$\text{Si}_3\text{N}_4/10\%$	$\text{Si}_3\text{N}_4/20\%$	$\text{Si}_3\text{N}_4/25\%$
AlN配合割合	74	77	78
熱伝導率	1.75	1.80	1.80

第 3 表

試料番号	7	8	9
セメダイン120の重量	4	3	2
AlN粉末重量	10	10	10
表面層の種類/量	Al ₂ O ₃ /10%	Al ₂ O ₃ /20%	Al ₂ O ₃ /10%
AlN配合割合	74	77	78
熱伝導率	1.75	1.78	1.84

第 4 表

試料番号	10	11	12
セメダイン-700の重量	2.8	2.5	2.3
AlN粉末重量	7.2	7.5	7.7
表面層の種類/量	Si ₃ N ₄ /10%	Si ₃ N ₄ /5%	Si ₃ N ₄ /20%
AlN配合割合	72	75	77
熱伝導率	1.72	1.81	1.78

伝導率が上昇するため、混合する複合AlNの重量は65~70%が望ましい。

〔発明の効果〕

以上述べたようにこの発明に係る耐熱性接着剤によれば、(1)熱伝導性がすぐれ、(2)耐熱性が常時150℃以上に保持でき、(3)常温から150~200℃の加熱冷却サイクルに耐え、(4)金属粉末を加えてないので電気伝導性がなく、(5)耐水性で長期の使用に耐え、しかも(6)接着性がきわめて良好などの効果を奏する。

4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明に用いる表面に耐食性の高い絶縁層を被覆した窒化アルミニウム粒を示す断面図。

- 1…耐食性の高い絶縁層
2…窒化アルミニウム粒

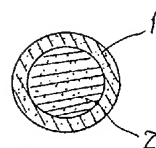
第 5 表

試料番号	13	14	15
ハードロックCの重量	3.0	2.5	2.0
複合AlN粉末重量	7.0	7.5	8.0
表面層の種類/量	Si ₃ N ₄ /10%	Al ₂ O ₃ /10%	Al ₂ O ₃ /10%
AlN配合割合	70	75	80
熱伝導率	1.71	1.78	1.92

以上の第1表から第5表は熱硬化性樹脂に溶媒を加えてから複合AlN粉末を加えてなる接着剤においては従来市販されているシリコンゴム中にFe₂O₃、Al₂O₃およびSiO₂を加えた接着剤に比較して2~3倍の熱伝導率を示すだけでなく電気絶縁性もすぐれる。又エポキシ樹脂に溶媒を使用しないで直接複合AlNを加えて充分かき混ぜた場合は操作がむずかしいが熱伝導率は高い傾向がえられた。

熱伝導率を高めるためには樹脂分を少なくすればよいが、複合AlNの重量が65~70%で急激に熱

第 1 図



PAT-NO: JP359022961A
DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 59022961 A
TITLE: HEAT-RESISTANT ADHESIVE
PUBN-DATE: February 6, 1984

INVENTOR-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
YONEYA, KATSUTOSHI	
INOUE, HIROSHI	

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
TOSHIBA CORP	N/A

APPL-NO: JP57131215
APPL-DATE: July 29, 1982

INT-CL (IPC): C08L083/04 , C08K005/54 ,
C08G059/14 , C08G059/40 ,
C09J003/16

US-CL-CURRENT: 524/428

ABSTRACT:

PURPOSE: To obtain titled adhesive resistant to repeated heating and cooling and humidity, with excellent thermal conductivity, electrical insulation and heat resistance, by incorporating a thermosetting synthetic resin with an aluminum

nitride powder covered with highly corrosion-resistant insulating layer.

CONSTITUTION: The objective adhesive can be obtained by incorporating (A) a thermosetting synthetic resin with (B) an aluminum nitride powder covered with highly corrosion-resistant electrical insulating layer (pref. of Si_3O_4 , Al_2O_3 or BN). The amount of the coating should be 1~50 (pref. 5~20)wt% based on the powder.

COPYRIGHT: (C)1984,JPO&Japio